

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 11 月 28 日 (28.11.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/094905 A1

(51) 国際特許分類: C08G 59/22, C08L 101/12, H01B 3/40

〒319-1221 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社 日立製作所 日立研究所内 Ibaraki (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP01/04177

(22) 国際出願日: 2001 年 5 月 18 日 (18.05.2001)

(74) 代理人: 弁理士 小川勝男(OGAWA, Katsuo); 〒103-0025 東京都中央区日本橋茅場町二丁目9番8号 友泉茅場町ビル 日東国際特許事務所 Tokyo (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(81) 指定国 (国内): JP, KR, US.

(26) 国際公開の言語: 日本語

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 日立製作所 (HITACHI, LTD.) [JP/JP]; 〒101-8010 東京都千代田区神田駿河台四丁目6番地 Tokyo (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

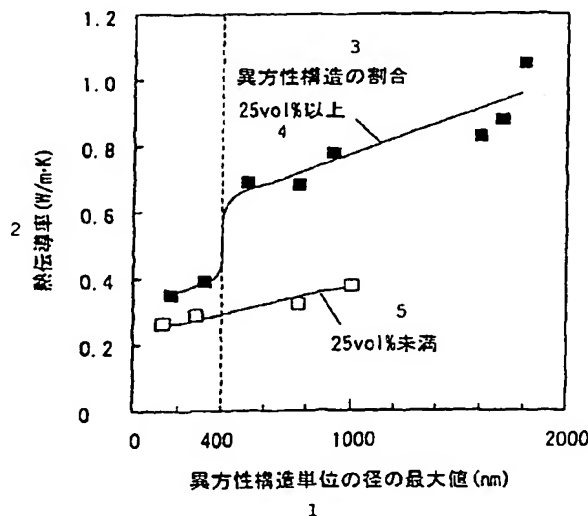
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 赤塚正樹 (AKAT-SUKA, Masaki) [JP/JP]. 竹澤由高 (TAKEZAWA, Yoshitaka) [JP/JP]. 菅原捷夫 (SUGAWARA, Katsuo) [JP/JP];

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: CURED THERMOSETTING RESIN PRODUCT

(54) 発明の名称: 熱硬化性樹脂硬化物



- 1... MAXIMUM VALUE IN DIAMETERS OF ANISOTROPIC STRUCTURE UNITS (nm)
- 2... HEAT CONDUCTIVITY (W/m · K)
- 3... PROPORTION OF ANISOTROPIC STRUCTURE
- 4... 25 vol % OR MORE
- 5... LESS THAN 25 vol %

(57) Abstract: A cured thermosetting resin product having high heat conductivity, characterized in the resin component thereof has an anisotropic structure, an anisotropic structure unit constituting the anisotropic structure has a covalent bonding portion, the maximum diameter of the anisotropic structure unit is 400 nm or more, and the resin component contains the anisotropic structure in an

[続葉有]

WO 02/094905 A1



amount of 25 vol % or more. The resin component of the cured thermosetting resin product having high heat conductivity is preferably a cured epoxy resin comprising an epoxy resin monomer and an epoxy resin curing agent. The epoxy resin monomer is preferably represented by the following general formula (1): E - M - S - M - E(1) wherein E, M and S represent an epoxy group, a mesogen group and a spacer part, respectively. The cured thermosetting resin product is significantly improved in heat conductivity.

(57) 要約:

熱硬化性樹脂硬化物の樹脂成分中に異方性構造が存在し、該異方性構造を構成する異方性構造単位が共有結合部を有しており、該異方性構造単位の径の最大値が400nm以上で、樹脂成分中に含まれる異方性構造の割合が25vol%以上である高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物にある。

前記高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物中の樹脂成分が、メソゲンを含むエポキシ樹脂モノマとエポキシ樹脂用硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化物であることが望ましい。

また、前記エポキシ樹脂モノマが、下記一般式(1)



(但し、Eはエポキシ基、Mはメソゲン基、Sはスペーサ部を示す)で表されるエポキシ樹脂モノマであることが望ましい。

これによって、熱伝導率を大きく高めた高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物を提供することができる。

- 1 -

明 細 書

熱硬化性樹脂硬化物

技術分野

本発明は、電気・電子機器等に用いる絶縁材料であって、特に、熱伝導性に優れた熱硬化性樹脂硬化物に関する。

背景技術

モーターや発電機からプリント配線基板に至るまでのほとんどの電気・電子機器は、電気を通すための導体と、絶縁材料とから構成される。

近年、これら電気機器の小型化が急速に進んでおり、絶縁材料に求められる特性もかなり高いものになってきている。なかでも、小型化に伴い高密度化された導体から発生する発熱量は大きくなってきており、いかに熱を放散させるかが重要な課題となっている。

これに対し、各種の電気機器の絶縁材料には、その絶縁性能の高さや成型の容易さ、耐熱性等の観点から、熱硬化性樹脂が広く使用されている。

しかし、一般的に熱硬化性樹脂の熱伝導率は低く、前記の熱の放散を妨げている大きな要因となっている。従って、高熱伝導率を有する絶縁材料の必要性は非常に高い。

高熱伝導性を有する材料としては、高熱伝導性のフィラ粉末を熱硬化性樹脂に混合した複合材料が知られている。使用されるフィラ粉末も銀やアルミニウムなどの金属粉末、二酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、フッ化アルミニウム、フッ化カルシウムなどの無機セラミック粉末などが多数検討されている。

しかしながら、熱硬化性樹脂にこのようなフィラ粉末を混合すると、

- 2 -

成形前の樹脂の粘度が著しく増大するため、微細構造体を製造することは困難であり、また、その作業性も極めて悪い。

また、熱硬化性樹脂の熱伝導率は極めて低く、少量のフィラ粉末を混合した材料ではそれほど熱伝導率が向上しないため、多量のフィラ粉末を混合する必要がある。しかし、多量のフィラ粉末を樹脂中に均一に分散させることは現実には難しい。

さらに、有機物である熱硬化性樹脂とフィラ粉末の親和性にも問題が生じる場合が多く、界面での剥離が非常に起こり易くなり、長期使用時にその絶縁性が大きく低下する可能性も大きい。

このような観点から、有機材料で高い熱伝導率を達成すると云う課題は極めて重要なことである。

有機材料で高熱伝導率を達成する方法として、特開昭61-296068号公報に、超高度に配向したポリマー繊維を充填した高熱伝導性を有するプラスチックコンパウンドが開示されている。これは、POLYMER、Vol.19、155頁(1978年)に記載されている超高度に配向したポリマー繊維は、その繊維軸方向に熱伝導率が向上すると云う性質を利用したものである。

しかしながら、超高度に配向したポリマー繊維は、その繊維軸に垂直な方向には熱伝導率が低下するため、有機絶縁組成物中にポリマー繊維をランダムに分散させても、熱伝導率はほとんど向上しない。

有機絶縁組成物中にポリマー繊維を一方向に配列させることにより、配列方向には熱伝導率の優れた有機絶縁材料を得ることができるが、それ以外の方向には熱伝導率は逆に低下してしまうと云う問題がある。

また、ADVANCED MATERIALS、Vol.5、107頁(1993年)、および、ドイツ国特許第4226994号には、メソゲン基を有するジアクリレート等のモノマを、ある一方向に配向させ

た後に架橋反応させることで、分子鎖の並んだフィルムの面内方向の熱伝導率が高い異方性材料が記載されている。しかし、それ以外の方向、特に、フィルムの厚さ方向の熱伝導率は低くなってしまう。

5 一般に、フィルム材料の熱の移動方向は、厚さ方向の場合が圧倒的に多く、このような材料では効果が小さい。

厚さ方向に分子鎖を並べる手法に関する検討もある。特開平1-149303号公報、特開平2-5307号公報、特開平2-28352号公報、特開平2-127438号公報には、静電圧を印可した状態でのポリオキシメチレンやポリイミドのような有機材料の製法が記載されている。

10 また、特開昭63-264828号公報には、ポリプロピレンやポリエチレン等の分子鎖が配列したシートを、配列方向が重なるように積層後、固着した積層物を、配向方向に垂直な方向に薄切りすることで、垂直方向に分子鎖が配列した材料が記載されている。

15 これらの手法では確かにフィルムの厚さ方向の熱伝導率が高い材料となるが、成形が非常に煩雑になってしまい、使用できる材料が限られてしまう。

特開平11-323162号公報には、メソゲンを有するモノマを重合した熱伝導率が $0.4 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上の絶縁組成物の記載がある。

20 この絶縁組成物は空間的にほぼ等方性でありながらその熱伝導率は高く、煩雑な成形法を取ることなく、厚さ方向の熱伝導率を高めることができる。しかし、その熱伝導率の値は $0.4 \sim 0.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 程度である。

25 特開平9-118673号公報には、2つのメソゲン基を有する液晶熱硬化性モノマ、および、このモノマから製造したスメクチック構造を有する液晶熱硬化性ポリマが記載されている。この液晶熱硬化性ポリマ

は、高度に配列したスメクチック構造を形成することができる。しかし、このポリマの熱伝導率に関しては一切記載されていない。

本発明は、上記事情に鑑み、空間的にはほぼ等方性を保ちながら、熱伝導率を大きく高めた高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物の提供を目的としている。

発明の開示

上記目的を達成する本発明の要旨は次ぎのとおりである。

〔１〕 熱硬化性樹脂硬化物の樹脂成分中に異方性構造が存在し、該異方性構造を構成する異方性構造単位が共有結合部を有しており、該異方性構造単位の径の最大値が４００ｎｍ以上で、樹脂成分中に含まれる異方性構造の割合が２５ｖｏｌ％以上であることを特徴とする熱硬化性樹脂硬化物。

〔２〕 前記熱硬化性樹脂硬化物中の樹脂成分が、メソゲンを有するエポキシ樹脂モノマとエポキシ樹脂用硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化物である上記〔１〕に記載の熱硬化性樹脂硬化物。

〔３〕 前記エポキシ樹脂モノマが、下記一般式（１）



（但し、Eはエポキシ基、Mはメソゲン基、Sはスペーサ部を示す）で表されるエポキシ樹脂モノマである前記〔２〕に記載の熱硬化性樹脂硬化物。

本発明における熱硬化性樹脂硬化物とは、その中の樹脂成分が加熱により架橋構造体を形成した樹脂硬化物を示す。

具体的な樹脂成分としては、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ユリア樹脂、ウレタン樹脂等の硬化物が挙げられる。特に、絶縁性、耐熱性が優れているエポ

キシ樹脂が挙げられる。これらの樹脂成分はモノマ、架橋剤、可とう化剤、希釈剤、改質剤等を含むことができる。

この熱硬化性樹脂硬化物は、上記の樹脂成分を主成分とし、その他に金属、無機セラミック、有機物の粉末、織布、不織布、短繊維、長繊維等を含むこともできる。この場合、これらは樹脂成分の熱伝導率には影響せず、樹脂成分の高い熱伝導率がそのまま効果として現れる。

本発明における異方性構造とは、ミクロな配列をしている構造体のことである。例えば、結晶相や液晶相などが相当する。このような構造体が樹脂中に存在するか否かは、偏光顕微鏡による観察によって容易に判別することができる。即ち、直行ニコル状態での観察において、偏光解消現象による干涉縞が見られることで判別可能である。

この異方性構造は、通常樹脂中に島状に存在しており、本発明における異方性構造単位とは、その一つの島のことである。本発明においては、この異方性構造単位は共有結合部を有していることが必要である。

本発明における異方性構造単位の径の最大値および異方性構造の割合は、透過型電子顕微鏡（TEM）により直接観察することで算出することができる。具体的な算出方法は後述の実施例中に記載する。

本発明におけるメソゲン基とは、液晶性を発現する可能性のある官能基を示す。具体的には、ピフェニル、フェニルベンゾエート、アゾベンゼン、スチルベン等やその誘導体が挙げられる。

また、本発明におけるエポキシ樹脂モノマとは、少なくとも1つのエポキシ基を有するモノマを示す。さらに、そのエポキシ樹脂モノマはメソゲン基を有していることが好ましい。具体的には、ピフェニル基、フェニルベンゾエート基、スチルベン基、アゾベンゼン基などのメソゲンを少なくとも一つ分子内に有するエポキシ樹脂モノマや、二つ以上分子内に有するツインメソゲンタイプのエポキシ樹脂モノマが挙げられる。

- 6 -

特に、下記一般式（１）に示されるようなツインメソゲンタイプのエポキシ樹脂モノマは、異方性構造単位の径の最大値および異方性構造の割合を向上させるのに最も好ましい。



5 （但し、Eはエポキシ基、Mはメソゲン基、Sはスペーサ部を示す）。

本発明におけるエポキシ樹脂用硬化剤とは、エポキシ樹脂を硬化するために用いられる硬化剤を指す。具体的には、酸無水物系硬化剤、ポリアミン系硬化剤、ポリフェノール系硬化剤、ポリメルカプタン系硬化剤等の重付加型硬化剤、イオン重合型の触媒型硬化剤、潜在性硬化剤等が

10 挙げられる。

上記によるところの高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物は、空間的にはほぼ等方性を保ちながら、熱伝導率を大きく高めた高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物となる。この熱硬化性樹脂自体の熱伝導率が高いため、例えば、高熱伝導性のフィラ粉末を同じ量混合した樹脂材料とすることで、

15 従来のものよりもより高い熱伝導率を有する樹脂材料となる。

従って、同じ熱伝導率の場合、混合しなければならないフィラ粉末の量を減らすことができ、硬化前の樹脂粘度を下げられるために、成形性が向上する。

このように、本発明の高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物による効果は

20 非常に大きく、発電機やモータ、変圧器等の絶縁層、半導体パッケージ用の材料、多層配線基板層間絶縁膜、基板ユニット、接着シート、塗布型接着剤、樹脂フィラ、バインダ樹脂、放熱板などに好適である。

図面の簡単な説明

25 第１図は、本発明における高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物のTEMによる観察結果の一例を示す図である。

第2図は、本発明における高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物の異方性構造単位の径の最大値と、熱伝導率との関係を示すグラフである。

第3図は、本発明における高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物の異方性構造の割合と、熱伝導率との関係を示すグラフである。

5

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施例を示し具体的に説明する。なお、実施例中に記載するエポキシ樹脂モノマ、エポキシ樹脂用硬化剤、アクリル樹脂モノマの種類とその略号を以下に示す。

10

〔エポキシ樹脂モノマ〕

Tw8 : 4-(オキシラニルメトキシ)ベンゾイックアシッド-4,4'-[1,8-オクタンジイルビス(オキシ)]ビスフェノールエステル

15

Tw6 : 4-(オキシラニルメトキシ)ベンゾイックアシッド-4,4'-[1,6-ヘキサンジイルビス(オキシ)]ビスフェノールエステル

Tw4 : 4-(オキシラニルメトキシ)ベンゾイックアシッド-4,4'-[1,4-ブタンジイルビス(オキシ)]ビスフェノールエステル

20

BzE : 4-(4-オキシラニルブトキシ)ベンゾイックアシッド-1,4'-フェニレンエステル

BiE : 4,4'-ビスフェノールジグリシジルエーテル

TME : 3,3',5,5'-テトラメチル-4,4'-ビスフェノールジグリシジルエーテル

25

BAE : ビスフェノールA-ジグリシジルエーテル

〔エポキシ樹脂用硬化剤〕

- 8 -

DDM : 4,4'-ジアミノジフェニルメタン

DDE : 4,4'-ジアミノジフェニルエーテル

DDS : 4,4'-ジアミノジフェニルスルホン

ddb : 4,4'-ジアミノ-3,3'-ジメトキシビフェニル

5 DSt : 4,4'-ジアミノ- α -メチルスチルベン

DBz : 4,4'-ジアミノフェニルベンゾエート

〔アクリル樹脂モノマ〕

BzA : 4-(6-アクリロイルヘキシルオキシ)ベンゾイックアシッド-1,4'-フェニレンエステル

10 〔アクリル樹脂用硬化剤〕

BPO : 過酸化ベンゾイル

DPA : ω , ω -ジメトキシ- ω -フェニルアセトフェノン

〔実施例 1〕

Tw8とDDMを予め160℃で溶融して混合し、離型処理済みの金型に流し込み、加熱硬化することで厚さ5mmの高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物から成る樹脂板を作成した。なお、エポキシ樹脂モノマと硬化剤の配合比は化学量論比とし、硬化温度は160℃、硬化時間は10時間とした。これらの条件は第1表にまとめて示す。

20 この樹脂板を直交ニコル状態に配置した2枚の偏光板の間に挿入し、顕微鏡で観察したところ、偏光解消による干渉縞が見られた。従って、この樹脂板は異方性構造を有していることが分かる。

この樹脂板の異方性構造単位をTEMにより観察した。観察にはRuO₄を染色剤に用い、倍率30,000倍で観察した。異方性構造単位の径の最大値は1600nmであり、異方性構造の割合は40vol%であった。なお、異方性構造の部分の境界は、撮影した写真をコントラスト調整による画像処理により決定した。

- 9 -

第1図に撮影した写真から異方性構造の部分を決定した観察結果を示す。異方性構造は深さ方向にも同様に分布していることから、異方性構造の割合は、図（写真）の全体の面積に対する異方性構造部の面積の割合として算出した。異方性構造単位の径の最大値は、それぞれの異方性構造単位の最も長い部分の測定値とした。

この樹脂板の熱伝導率を測定したところ、 $0.83 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ と非常に高い熱伝導率を示した。なお、熱伝導率は、平板比較法による試料の厚さ方向の値であり、測定時の試料の平均温度は約 80°C とした。なお、標準試料には、ほうけい酸ガラスを用いた。以上の結果は、第2表にまとめて示す。

- 10 -

第 1 表

No.	モノマ	硬化剤	硬化剤の配合量	硬化温度(°C)
実施例 1	Tw8	DDM	化学量論量	150
実施例 2	Tw6	DDE	化学量論量	180
実施例 3	Tw4	DDS	化学量論量	200
実施例 4	BAE	DSt	化学量論量	180
実施例 5	BzE	DBz	化学量論量	180
実施例 6	BzA	BPO	0.5wt%	80
比較例 1	BzE	DBz	化学量論量	230
比較例 2	BiE	DDM	化学量論量	180
比較例 3	BiE	DBi	化学量論量	180
比較例 4	BzA	DPA	0.5wt%	50*
比較例 5	TME	DBi	化学量論量	180
比較例 6	TME	DDM	化学量論量	150
比較例 7	BAE	DDM	化学量論量	150

*UV照射による反応(1時間)

- 11 -

第 2 表

No.	異方性構造	異方性構造単位 の径の最大値 (nm)	異方性構造 の割合 (vol%)	熱伝導率 (W/m·K)
実施例1	○	1600	40	0.83
実施例2	○	1700	43	0.88
実施例3	○	1800	45	1.05
実施例4	○	910	35	0.78
実施例5	○	520	38	0.69
実施例6	○	760	26	0.68
比較例1	○	320	37	0.44
比較例2	○	170	29	0.30
比較例3	○	760	22	0.33
比較例4	○	1000	15	0.38
比較例5	○	280	20	0.29
比較例6	○	130	14	0.26
比較例7	×	-	-	0.19

〔実施例 2～6〕

第1表に示すモノマと硬化剤を組み合わせで硬化した高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物の樹脂板を、実施例1と同様に作成した。なお、硬化剤の配合量は第1表に示す量とし、硬化条件は第1表の硬化温度で行い
5 硬化時間は10時間とした。

この樹脂板の異方性構造の有無、熱伝導率、異方性構造単位の径の最大値、異方性構造の割合を実施例1と同様に測定し、その結果を第1表に併せて示す。

いずれの樹脂板も異方性構造が確認され、異方性構造単位の径の最大
10 値は400nm以上、異方性構造の割合は25vol%であった。

これらの樹脂板の熱伝導率は、0.68～1.05W/m・Kと非常に高かった。中でも、実施例1～3のツインメソゲンタイプのエポキシ樹脂モノマを用いた樹脂板では、異方性構造単位の径の最大値、異方性構造の割合共に実施例4～6に比べても大きく、熱伝導率0.83～1.0
15 5W/m・Kと極めて高かった。

以上の結果から、ツインメソゲンタイプのエポキシ樹脂モノマが、異方性構造単位の径の最大値、異方性構造の割合共に大きくするのに好適であり、より高い熱伝導率を達成できることが分かる。

〔比較例 1～7〕

第1表に示すモノマと硬化剤を組み合わせで硬化した熱硬化性樹脂硬化物の樹脂板を、実施例1と同様に作成した。なお、硬化剤の配合量は第1表に示す量とし、硬化条件は第1表の硬化温度で行い硬化時間は1
20 0時間とした。

但し、比較例4は、UVを照射しながら硬化反応を行い、その硬化時
25 間は1時間とした。

この樹脂板の異方性構造の有無、熱伝導率、異方性構造単位の径の最

大値、異方性構造の割合を実施例 1 と同様に測定し、その結果を第 2 表に併せて示す。

異方性構造単位の径の最大値が 400 nm 未満である比較例 1, 2 の樹脂の熱伝導率は 0.44, 0.30 W/m・K と低い。また、異方性構造の割合が 25 vol % 未満の比較例 3, 4 の樹脂の熱伝導率は 0.33、0.38 W/m・K と低かった。

また、異方性構造単位の径の平均値が 700 nm 未満であり、かつ、異方性構造の割合が 25 vol % 未満の比較例 5, 6 の樹脂の熱伝導率は 0.29, 0.26 W/m・K とさらに低い。なお、異方性構造を持たない比較例 7 の樹脂の熱伝導率は 0.19 W/m・K と、非常に低い。

以上の実施例 1～6 および比較例 1～7 の樹脂の熱伝導率を、その異方性構造単位の径の最大値に対してプロットしたグラフを第 1 図に、異方性構造の割合に対してプロットしたグラフを第 2 図に示す。

第 2 図より、異方性構造の割合が 40 vol % 以上の場合、異方性構造単位の径の最大値が 400 nm 以上になることで、熱伝導率が急激に上昇することが分かる。但し、異方性構造の割合が 25 vol % 未満の場合、その効果はほとんど見られない。

また、第 3 図からは、異方性構造単位の径の最大値が 400 nm 以上の場合、異方性構造の割合が 25 vol % 以上となることで、熱伝導率が急激に上昇することが分かる。但し、異方性構造単位の径の最大値が 400 nm 未満の場合、その効果はほとんど見受けられない。

産業上の利用可能性

本発明によれば、空間的にはほぼ等方性を保ちながら、熱伝導率を大きく高めた高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物を得ることができ、これを電気・電子機器等の絶縁材料に用いることで、放熱性の良い電気・電子

- 14 -

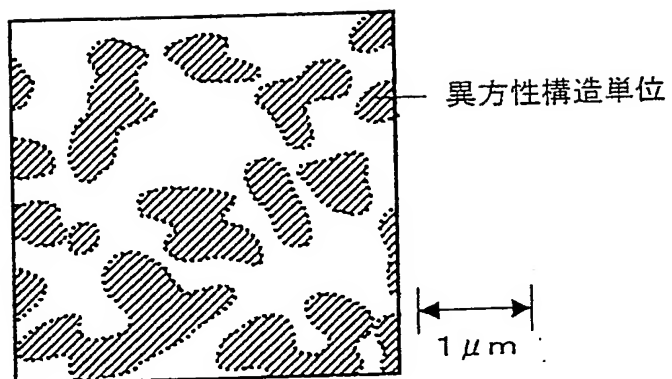
機器を得ることができる。

請求の範囲

1. 熱硬化性樹脂硬化物の樹脂成分中に異方性構造が存在し、該異方性構造を構成する異方性構造単位が共有結合部を有しており、該異方性構造単位の径の最大値が400nm以上で、樹脂成分中に含まれる異方性構造の割合が25vol%以上であることを特徴とする
- 5 高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物。
2. 前記高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物中の樹脂成分が、メソゲンを有するエポキシ樹脂モノマとエポキシ樹脂用硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化物である請求の範囲第1項に記載の高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物。
- 10 3. 前記エポキシ樹脂モノマが、下記一般式(1)
- $$E-M-S-M-E \quad \dots (1)$$
- (但し、Eはエポキシ基、Mはメソゲン基、Sはスペーサ部を示す)で表されるエポキシ樹脂モノマである請求の範囲第2項に記載の高熱伝導性の熱硬化性樹脂硬化物。

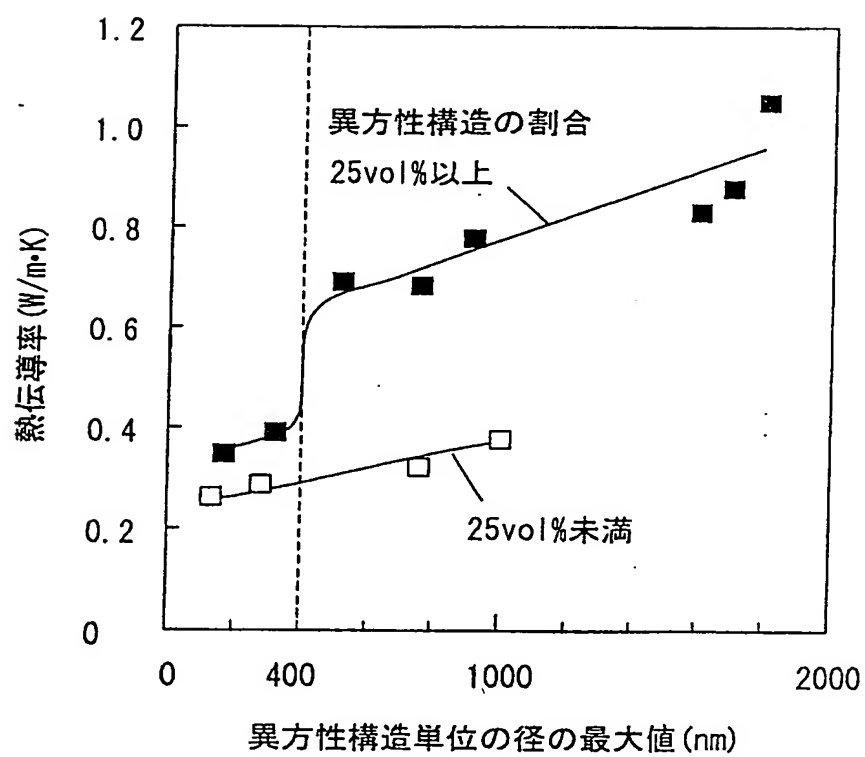
- 1 / 3 -

第 1 図



- 2 / 3 -

第 2 図



- 3 / 3 -

第 3 図

